

### Verfahren zum Betrieb eines Wasserstoff-Testlecks

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Betrieb eines Wasserstoff-Testlecks, das eine durch eine Membran begrenzte Kammer aufweist, in welche ein Prüfgasgemisch aus Wasserstoff und mindestens einem Beimischungsgas eingeführt wird.

Testlecks werden benutzt, um Leckstrommessgeräte zu kalibrieren. Ein Testleck weist einen Behälter auf, in dem ein Volumen eines Prüfgases oder Prüfgasgemisches unter geregelter Druck gehalten wird. Die Kammer enthält einen Ausgang, der an eine Kapillare oder ein anderes definiertes Testleck, das ins Freie führt, angeschlossen ist. Zur Druckregelung weist die Kammer eine Membran auf, die mit einer Feder abgestützt ist und bei Auslenkung ein

- 2 -

Regelventil betätigt, welches eine das Gas liefernde Druckquelle ein- und ausschaltet.

Wasserstoff darf aufgrund seiner Explosivität nicht als reines Gas in Testlecks eingesetzt werden. Daher wird üblicherweise ein sauerstofffreies Wasserstoff-/Stickstoffgemisch als Prüfgasgemisch (Formiergas) verwendet. Nun ist die Membran, die die Kammer des Druckregelventils abschließt, nicht gasundurchlässig. Vielmehr hat sie für verschiedene Gase unterschiedene Permeabilitäten. Dies hat zur Folge, dass der Wasserstoff schneller aus der Kammer entweicht als der Stickstoff, so dass die Stickstoffkonzentration in der Kammer zunimmt. Üblicherweise besteht das Prüfgasgemisch aus 95 % N<sub>2</sub> und 5 % H<sub>2</sub>. Der Wasserstoffanteil kann bis zu 10 % betragen. Darüber besteht Explosionsgefahr.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zum Betrieb eines Wasserstoff-Testlecks anzugeben, das eine hohe zeitliche Konstanz der Leckrate aufweist.

Das erfindungsgemäße Verfahren ist durch den Patentanspruch 1 definiert. Erfindungsgemäß wird als Beimischungsgas ein Gas gewählt, das in Bezug auf das Material der Membran einen Permeationskoeffizienten hat, der zwischen 50 % und 200 % desjenigen von Wasserstoff liegt.

Die Erfindung geht von dem Gedanken aus, dass zur Vermeidung einer Entmischung durch Permeation die Komponenten des Prüfgasgemisches annähernd gleiche Permeationskoeffizienten in Bezug auf das Membranmaterial haben sollte. Die Permeationskoeffizienten hängen weitgehend, jedoch nicht ausschließlich, von der Molekülgröße ab. Das Wasserstoffmolekül ist relativ klein und hat im Allgemeinen relativ hohe Permeationskoeffizienten. Entsprechendes gilt auch für Helium. Andererseits hat sich ergeben, dass auch relativ große

- 3 -

Moleküle, wie beispielsweise  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$  oder  $\text{C}_2\text{H}_6$  eine hohe Permeation aufweisen können.

Als Beimischungsgas für Wasserstoff hat sich Helium als besonders geeignet erwiesen. In Versuchen hat sich gezeigt, dass die Permeation durch eine Membran im Wesentlichen gleich schnell für Wasserstoff und Helium verläuft. Ein Vorteil dieser Kombination besteht darin, dass man den Wasserstoffanteil auf etwa 5 % reduzieren kann. Dies ist im Hinblick auf Gefahrgutklassen von Bedeutung. Eine weitere Randbedingung besteht darin, dass die Lebensdauer des Testlecks bei einem Jahr liegen sollte. Bisher war ein Wasserstoffanteil von 5 % nicht möglich, da durch die notwendige Bypasskapillare zu viel Gas ausgestoßen wurde und die Lebensdauer nicht eingehalten werden konnte.

Als Beimischungsgas geeignet sind Helium (He), Kohlendioxid ( $\text{CO}_2$ ), Methan ( $\text{CH}_4$ ) und Ethan ( $\text{C}_2\text{H}_6$ ). Diese Aufzählung ist jedoch nicht abschließend.

Das Beimischungsgas sollte sauerstofffrei sein, damit es nicht mit dem Wasserstoff ein explosionsfähiges Gemisch bildet. Dies ist allerdings keine notwendige Bedingung. Durch Verringerung des Wasserstoffanteils kann die Explosionsfähigkeit des Prüfgasgemisches verringert werden.

Im Folgenden wird unter Bezugnahme auf die Zeichnungen ein Ausführungsbeispiel der Erfindung näher erläutert.

Es zeigen:

Fig. 1 ein Funktionsschaubild des Wasserstoff-Testlecks, und

Fig. 2 eine prinzipielle konstruktive Ausgestaltung des Wasserstoff-Testlecks.

- 4 -

Gemäß Figur 1 wird ein Prüfgasgemisch 10 in ein Druckregelvolumen 11 eingeführt. Das Druckregelvolumen 11 weist ein Druckreduzierventil auf, welches mit einer Regelmembran 12 versehen ist. Ein Druckregelventil 13 regelt mit Hilfe der Regelmembran 12 den Druck im Druckregelvolumen 11 auf einen konstanten Wert. Das Druckregelventil ist mit einer leckratenbestimmenden Kapillare 14 verbunden, aus der der Leckstrom 15 mit der Prüfgasleckrate austritt.

Das Druckregelvolumen 11 bzw. das Druckregelventil 13 ist mit einer Bypasskapillare 16 verbunden, die einen Bypassstrom 17 ins Freie leitet, um eine ständige Durchströmung des Druckregelvolumens 11 zur Vermeidung von Entmischungen zu bewirken.

Figur 2 zeigt den Druckregler 20, dem das Prüfgasgemisch 10 zugeführt wird. Der Druckregler 20 enthält eine Kammer 21, in die das Prüfgasgemisch eingeführt wird. Diese Kammer ist mit einer Membran 22 verschlossen. Die Membran 22 besteht aus Elastomermaterial. Sie ist von einer Feder 23 abgestützt, die dem Druck in der Kammer 21 entgegenwirkt. Das Druckregelventil 24 weist eine Leitung 25 auf, mit der das unter hohem Druck stehende Prüfgasgemisch in die Kammer 21 eingeführt wird. Der Auslass der Leitung 25 wird von einem beweglichen Ventilorgan 26 geöffnet und geschlossen. Das Ventilorgan 26 ist über eine Stange 27, welche einen zweiarmigen Hebel bildet, mit einer Kopplungseinrichtung 28 verbunden, welche den einen Hebelarm mit der Membran 22 verbindet. Die Auslenkbewegungen der Membran 22 bewirken, dass das Druckregelventil 24 geöffnet oder geschlossen wird. Auf diese Weise wird ein der Kraft der Feder 23 entsprechender Druck in der Kammer 21 eingestellt und aufrechterhalten.

In Figur 2 ist ferner der Testleckausgang 30 dargestellt, der mit einer (nicht dargestellten) leckratenbestimmenden Kapillare verbunden ist, welche ins Freie führt.

- 5 -

Ferner ist an der Kammer 21 eine Bypasskapillare 31 vorgesehen, durch die ein Leckstrom ständig ins Freie geführt wird.

Der Raum unter der Membran 22 ist durch einen Behälter 33 begrenzt, der die Feder 23 abstützt und eine Entlüftungsöffnung 34 aufweist.

Die kleinen Punkte in Figur 2 repräsentieren das Mischgasvolumen und die dicken Punkte repräsentieren die Wasserstoffmoleküle. Die Wasserstoffmoleküle defundieren aus der Kammer 21 durch die Membran 22 und gelangen durch die Entlüftungsöffnung 34 auch ins Freie.

Die Membran 22 ist eine Polymermembran. Bei einem Ausführungsbeispiel besteht sie aus Polybutadiene-Co-Acrylonitrile (Perbunan 18). Bei einem anderen Ausführungsbeispiel besteht sie aus 73/27 Perbunan.

Die nachstehende Tabelle gibt den Permeationskoeffizient P für die genannten Membranwerkstoffe an. Der Permeationskoeffizient P hat in der nachfolgend zitierten Tabelle (aus Yasuda, H., Stannet, V.: Polymer Handbook, J. Wiley & Sons, New York 1975) die Dimension

$$[\text{cm}^3 (\text{STP}) \text{ cm cm}^{-2} \text{ s}^{-1} (\text{cm Hg})^{-1}]$$

#### Tabelle

Membranmaterial		P x 10 <sup>10</sup>
Poly(butadiene-co-acrylonitrile) 80/20	He	16,9
	H <sub>2</sub>	25,2
	N <sub>2</sub>	2,52
	O <sub>2</sub>	8,16
	CO <sub>2</sub>	63,1
73/27 (Perbunan)	He	12,2
	H <sub>2</sub>	15,9
	N <sub>2</sub>	1,06
	O <sub>2</sub>	3,85

- 6 -

CO <sub>2</sub>	30,8
C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>	24,9
C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	77,7

Der Permeationskoeffizient P für Wasserstoff beträgt hier je nach Membranmaterial 25,2 oder 15,9. Das Beimischungsgas wird so gewählt, dass sein Permeationskoeffizient zwischen 50 und 200 % desjenigen von Wasserstoff liegt. Hierfür kommen auch noch andere Beimischungsgase in Betracht, die in der Tabelle nicht angegeben sind. Vorzugsweise liegt der genannte Bereich zwischen 50 % und 150 %.

PATENTANSPRÜCHE

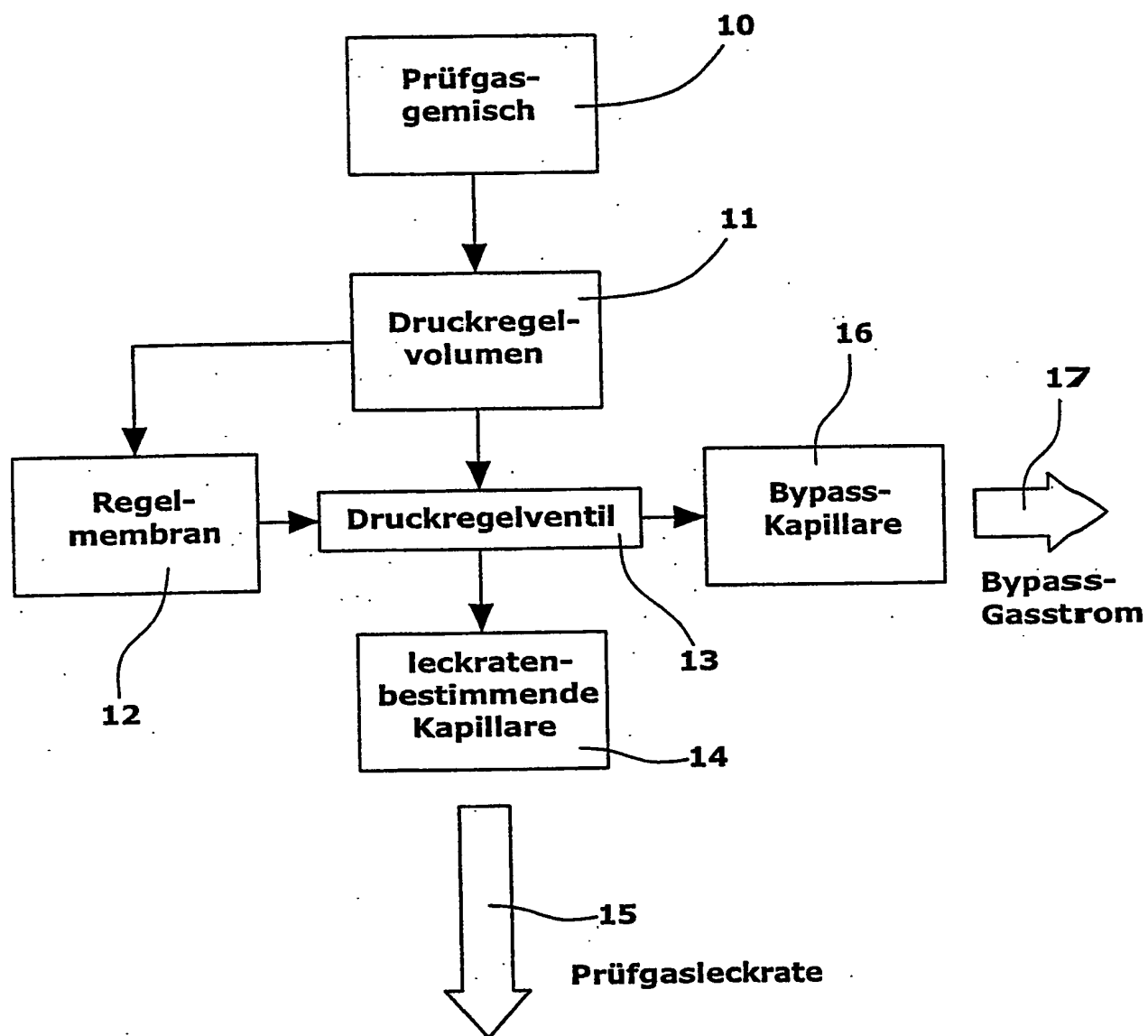
1. Verfahren zum Betrieb eines Wasserstoff-Testlecks, das eine durch eine Membran (22) begrenzte Kammer (21) aufweist, in welcher ein Prüfgasgemisch aus Wasserstoff und mindestens einem Beimischungsgas eingeführt wird,

d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,

dass das Beimischungsgas in Bezug auf das Material der Membran (22) einen Permeationskoeffizienten (P) hat, der zwischen 50 % und 200 % desjenigen von Wasserstoff liegt.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als Beimischungsgas Helium, Kohlendioxid oder Methan gewählt wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass das Beimischungsgas sauerstofffrei ist.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 - 3, dadurch gekennzeichnet, dass der Wasserstoffanteil des Prüfgasgemisches geringer ist als 10 %.

- 1/2 -



**Fig.1**



- 2/2 -

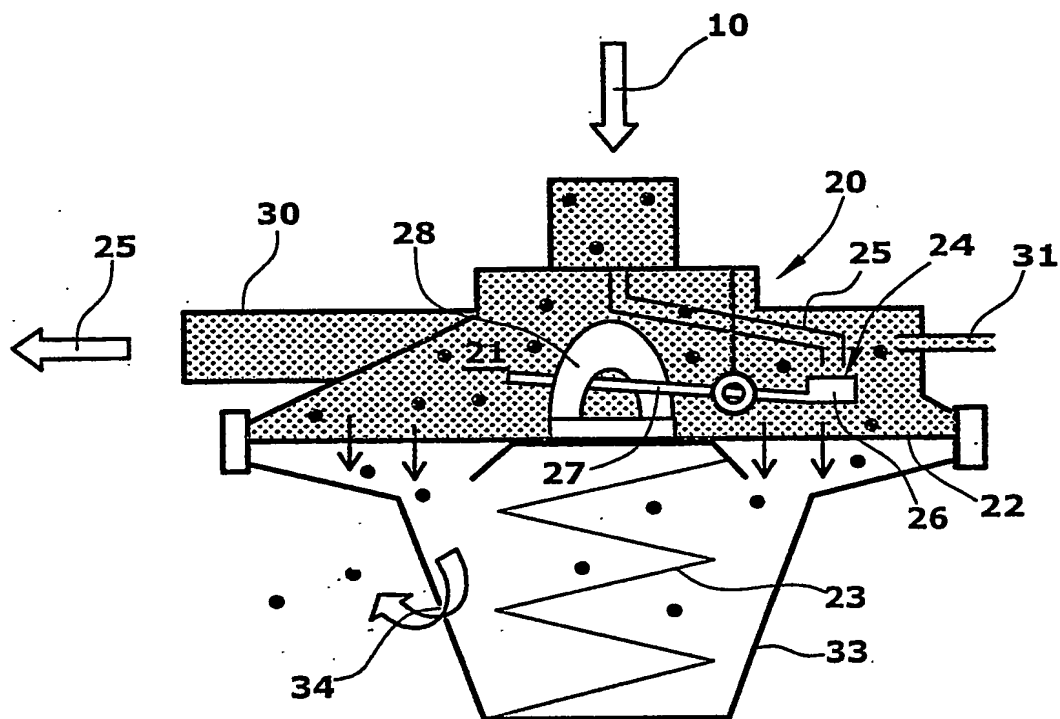


Fig.2

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.  
PCT/EP2004/012334

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 G01M3/20

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 7 G01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	DE 101 22 733 A1 (INFICON GMBH) 14 November 2002 (2002-11-14) paragraph '0005!; claim 1	1
A	WO 02/47189 A (SIEMENS AKTIENGESSELLSCHAFT; MATTEJAT, ARNO; VOITLEIN, OTTMAR) 13 June 2002 (2002-06-13) abstract; figure 1	1
A	EP 0 395 965 A (LUZ INDUSTRIES ISRAEL LTD) 7 November 1990 (1990-11-07) abstract; figure 1	1
A	EP 0 503 925 A (AGENCY OF INDUSTRIAL SCIENCE & TECHNOLOGY MINISTRY OF INTERNATIONAL TR) 16 September 1992 (1992-09-16) column 4, line 56 - column 5, line 45; figure 3	1

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

11 April 2005

Date of mailing of the international search report

19/04/2005

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Trique, M

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP2004/012334

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 10122733	A1	14-11-2002	WO 02090917 A2	14-11-2002
WO 0247189	A	13-06-2002	DE 10060626 A1	20-06-2002
			CA 2437004 A1	13-06-2002
			WO 0247189 A1	13-06-2002
			DE 50105151 D1	24-02-2005
			EP 1340280 A1	03-09-2003
			JP 2004515889 T	27-05-2004
			US 2005003245 A1	06-01-2005
EP 0395965	A	07-11-1990	US 4892142 A	09-01-1990
			AU 5451090 A	08-11-1990
			BR 9002104 A	13-08-1991
			CA 2016051 A1	05-11-1990
			EP 0395965 A2	07-11-1990
			JP 3165810 A	17-07-1991
EP 0503925	A	16-09-1992	JP 2071909 C	25-07-1996
			JP 6258170 A	16-09-1994
			JP 7109380 B	22-11-1995
			DE 69200871 D1	26-01-1995
			DE 69200871 T2	27-07-1995
			EP 0503925 A1	16-09-1992
			KR 137128 B1	29-04-1998
			US 5261268 A	16-11-1993

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/012334

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 G01M3/20

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 G01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DE 101 22 733 A1 (INFICON GMBH) 14. November 2002 (2002-11-14) Absatz '0005!; Anspruch 1; Abbildung 1	1
A	WO 02/47189 A (SIEMENS AKTIENGESSELLSCHAFT; MATTEJAT, ARNO; VOITTEIN, OTTMAR) 13. Juni 2002 (2002-06-13) Zusammenfassung; Abbildung 1	1
A	EP 0 395 965 A (LUZ INDUSTRIES ISRAEL LTD) 7. November 1990 (1990-11-07) Zusammenfassung; Abbildung 1	1
A	EP 0 503 925 A (AGENCY OF INDUSTRIAL SCIENCE & TECHNOLOGY MINISTRY OF INTERNATIONAL TR) 16. September 1992 (1992-09-16) Spalte 4, Zeile 56 - Spalte 5, Zeile 45; Abbildung 3	1

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche

11. April 2005

Absenddatum des Internationalen Recherchenberichts

19/04/2005

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Trique, M

# INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/012334

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
DE 10122733	A1	14-11-2002	WO	02090917 A2	14-11-2002
WO 0247189	A	13-06-2002	DE	10060626 A1	20-06-2002
			CA	2437004 A1	13-06-2002
			WO	0247189 A1	13-06-2002
			DE	50105151 D1	24-02-2005
			EP	1340280 A1	03-09-2003
			JP	2004515889 T	27-05-2004
			US	2005003245 A1	06-01-2005
EP 0395965	A	07-11-1990	US	4892142 A	09-01-1990
			AU	5451090 A	08-11-1990
			BR	9002104 A	13-08-1991
			CA	2016051 A1	05-11-1990
			EP	0395965 A2	07-11-1990
			JP	3165810 A	17-07-1991
EP 0503925	A	16-09-1992	JP	2071909 C	25-07-1996
			JP	6258170 A	16-09-1994
			JP	7109380 B	22-11-1995
			DE	69200871 D1	26-01-1995
			DE	69200871 T2	27-07-1995
			EP	0503925 A1	16-09-1992
			KR	137128 B1	29-04-1998
			US	5261268 A	16-11-1993

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**